

SCHACHTREAKTOR UND SEINE VERWENDUNG

Patent number: DE4120788

Publication date: 1993-01-07

Inventor: GREGER MANFRED DR (DE); GUTSCHE BERNHARD DR (DE); JEROMIN LUTZ DR (DE); BRINKMANN HEINER (DE)

Applicant: HENKEL KGAA (DE)

Classification:

- **international:** B01J8/02; C07C29/149

- **european:** B01J8/02H; C07C29/149

Application number: DE19914120788 19910624

Priority number(s): DE19914120788 19910624

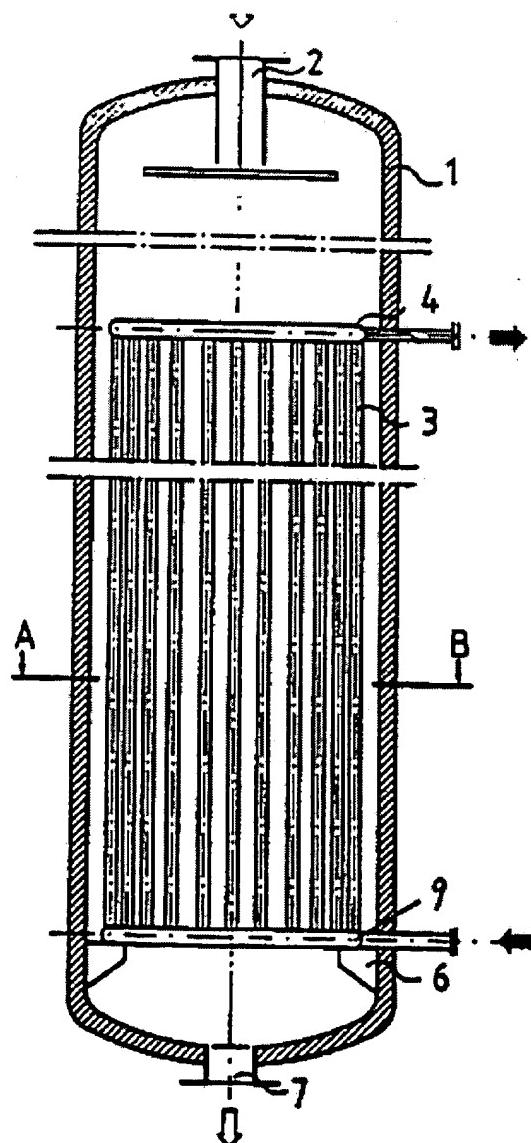
Also published as:

WO9300159 (A1)

[Report a data error here](#)

Abstract of DE4120788

The invention concerns a vertically mounted cylindrical single-shaft reactor for solid-catalysed gas/liquid reactions, in particular a hydration reactor for trickle-bed operation. The reactor has an outer shell (1), at least one inlet (2), at least one outlet (7) and a solid catalyst bed. In order to ensure efficient heat extraction and also that the advantages inherent in the single-shaft reactor design are utilized (i.e. the fact that feeding liquid to the catalyst bed is straightforward in comparison with multi-tube reactors and replacement of the catalyst is simple), the reactor includes at least one cooling element (3, 4, 9), at least part of which is located inside the catalyst bed and which has a multiplicity of hollow elements, in particular tubes (3), disposed with their longitudinal axes vertical and connected at the top and bottom, respectively, to a feed line (9) and collector line (4). The hollow elements (3) are disposed in concentric rings about the longitudinal axis of the reactor, the distance between adjacent elements within a ring preferably being less than the distance between adjacent rings.



THIS PAGE BLANK (USPTO)

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

THIS PAGE BLANK (USPTO)



(19) BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

(12) **Offenlegungsschrift**
(10) **DE 41 20 788 A 1**

(51) Int. Cl. 5:

B 01 J 8/02

C 07 C 29/149

(71) Anmelder:

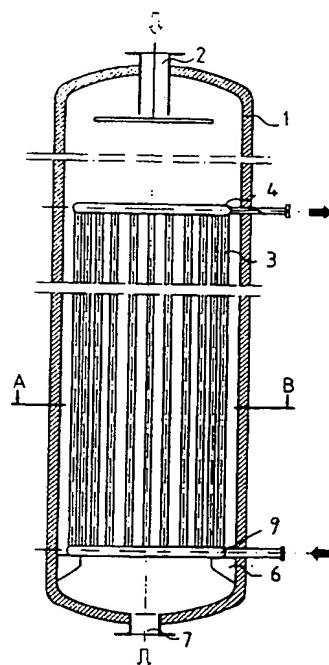
Henkel KGaA, 4000 Düsseldorf, DE

(72) Erfinder:

Greger, Manfred, Dr., 4000 Düsseldorf, DE; Gutsche, Bernhard, Dr.; Jeromin, Lutz, Dr., 4010 Hilden, DE; Brinkmann, Heiner, 4018 Langenfeld, DE

(54) Schachtreaktor und seine Verwendung

(57) Die Erfindung betrifft einen lotrecht angeordneten rohrförmigen Schachtreaktor für feststoffkatalysierte Gas-Flüssigkeitsreaktionen, insbesondere Hydrierreaktor für die Riesel-fahrtweise ("trickle bed"), mit einem Mantel (1), mindestens einem Einlaß (2) und mindestens einem Auslaß (7) und einem Katalysatorfestbett. Damit gleichzeitig eine gute Wärmeabfuhr erreicht wird und die Vorteile des Schachtreaktors genutzt werden, d. h. im Vergleich zum Rohrbündelreaktor die unproblematische Flüssigkeitsaufgabe auf das Festbett und der einfacheren Katalysatorwechsel, enthält der Reaktor mindestens ein zumindest teilweise innerhalb des Katalysatorfestbetts angeordnetes Kühelement (3, 4, 9), das mehrere Hohlkörper, insbesondere Rohre (3), mit lotrechten Längsachsen aufweist, die oben und unten in eine Aufgabe- (9) bzw. Sammelleitung (4) münden, wobei die Hohlkörper (3) in konzentrischen Ringen um die Längsachse des Reaktors angeordnet sind, wobei der Abstand benachbarter Hohlkörper innerhalb eines Rings dabei vorzugsweise gerin-ger als der Abstand benachbarter Ringe ist.



DE 41 20 788 A 1

DE 41 20 788 A 1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft einen lotrecht angeordneten rohrförmigen Schachttreaktor für feststoff-katalysierte Gas-Flüssigkeitsreaktionen, insbesondere einen Hydrierreaktor für die Rieselfahrweise ("trickle-bed"), mit einem Mantel, mindestens einem Einlaß und mindestens einem Auslaß und einem Katalysatorfestbett.

Die Hydrierung von Fetten, Fettsäuren bzw. Fettsäureestern ist eine stark exotherme Reaktion, die z. B. in flüssiger Phase bei Drücken bis 300 bar und Temperaturen bis 250°C im Festbettreaktor unter großem Wasserstoff-Überschuß durchgeführt wird.

Zum Erreichen hoher Selektivitäten und damit geringer Nebenproduktbildung sowie hoher Katalysatorstandzeiten z. B. durch Reduzierung der Rekristallisationsgeschwindigkeit sind Maßnahmen zur Abfuhr der aufgrund der Exothermie der Hydrierreaktionen auftretenden Reaktionswärme notwendig.

Technische Möglichkeiten dazu sind die Verdampfungskühlung z. B. durch Zugabe von Methanol bei einer Methylesterhydrierung oder die Wärmeabfuhr durch Konvektion eines hohen Wasserstoff-Gasstroms.

Bei aus einem Rohr mittleren oder großen Durchmessers ($d > 200$ mm) bestehenden Festbettreaktoren ist aufgrund der relativ schlechten Wärmeleitfähigkeit der Schüttung und der großen Wandstärken eine Wärmeabfuhr über die Wand nur in geringem Maße möglich, so daß Verdampfungskühlung und/oder Wärmeabfuhr durch Konvektion des Wasserstoffs zur Einhaltung von Maximal-Temperaturen dringend erforderlich sind.

Gelingt es durch andere technische Maßnahmen, eine bessere Wärmeabfuhr zu erreichen, kann auf die Zugabe von Flüssigkeit zur Verdampfung verzichtet werden bzw. der Mengenstrom an Wasserstoff reduziert werden.

Für stark exotherme Gas-Gas-Feststoff-Reaktionen werden in der Literatur viele Vorschläge gemacht. Bekannt ist ein Rohrbündelreaktor mit von Wärmeübertragungsfluid umströmten Rohren kleinen Durchmessers, die mit Katalysator gefüllt sind (O. Levenspiel, Chemical Reaction Engineering (1972), S. 508 und z. B. DE-PS 25 43 758 (1978)).

Eine andere Variante für Gas-Gas-Feststoff-Systeme wird von P. Trambrouze (Les Reacteurs Chimiques, Ed. Technip, Paris (1984), S. 436) vorgeschlagen: In einer Katalysatorschüttung eines Schachttreaktors erfolgt die Abfuhr von Wärme durch ein System von Kühlrohren, d. h. es erfolgt gegenüber dem Rohrbündelreaktor ein Austausch der Medien innerhalb und außerhalb der Rohre. Das Kühlmittel wird durch die Rohre geleitet, die Reaktion findet in der Schüttung im Außenraum statt.

Spezielle Reaktoren dieser Bauart wurden zur Methanol- und zur Ammoniaksynthese konzipiert (DE 30 07 202 DE 30 07 203 und DE 35 22 308). Dabei wurde auch der Einsatz von mit einem Kühlmedium durchströmten Kühlplatten vorgeschlagen (EP 3 24 670A) bzw. die Kühlung zur direkten Frisch-Edukt-Gas-Vorwärmung innerhalb des Reaktors verwendet (EP 01 14 138A).

Für Reaktionen von Gas und Flüssigkeit in einem Katalysatorfestbett (trickle-bed-Reaktoren) ist neben der Kühlung durch die gezielte Einspeisung von Kaltgas wie bei der Ammoniak-Synthese (W. Brötz, Verlag Chemie (1970), S. 254, z. B. Frisch-Wasserstoff bei der Hydrierung von Fettderivaten) auch der Betrieb von Rohr-

bündelreaktoren bekannt (W. Swodenk, Chem. Techn. 4 (1975) S. 439). Die Anwendung auf die Fettchemie ist beispielsweise in der DE 38 09 270 A1 beschrieben.

Bei stark exotherm ablaufenden Gas-Flüssigreaktionen in einem Festbettreaktor, bei denen aus Selektivitätsgründen ein enger Temperaturbereich eingehalten werden muß, ist grundsätzlich ein Rohrbündelreaktor vorteilhaft. Nachteilig bei diesem Reaktortyp sind jedoch die beim Scale-up von Versuchs- auf Produktionsanlagen auftretenden Probleme der gleichmäßigen Beaufschlagung der Einzelrohre mit den Fluiden insbesondere der Flüssigkeit. Zusätzlich ist ein erhöhter Mehraufwand beim Befüllen, Entleeren und Reinigen der Reaktionsrohre notwendig.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, einen Reaktortyp der eingangs genannten Art zu schaffen, mit dem eine gute Wärmeabfuhr erreicht wird und dabei die Vorteile des Schachttreaktors zu nutzen, d. h. im Vergleich zum Rohrbündelreaktor unproblematische Flüssigkeitsaufgabe auf das Festbett und der einfachere Katalysatorwechsel.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß mindestens ein zumindest teilweise innerhalb des Katalysatorfestbetts angeordnetes Kühelement vorgesehen ist, das mehrere Hohlkörper, insbesondere Rohre, mit lotrechten Längssachsen aufweist, die oben und unten in eine Aufgabe — bzw. Sammelleitung münden, wobei die Hohlkörper in konzentrischen Ringen um die Längsachse des Reaktors angeordnet sind und der Abstand benachbarter Hohlkörper innerhalb eines Rings geringer als der Abstand benachbarter Ringe ist. Durch die vorgesehenen Ringleitungen wird eine für die Rieselbett-Fahrweise wichtige gleichmäßige Verteilung der Einsatzstoffe sichergestellt, da ein möglichst großer freier Querschnitt am Kopf des Reaktors im Bereich des Zuflusses des Kühlmittels erreicht wird. Ähnlich wie beim Rohrbündelreaktor wird mit dem vorgeschlagenen Reaktor-Konzept eine gute Wärmeabfuhr erreicht und damit die Vorteile des Schachttreaktors sowie die Vorteile des Rohrbündelreaktors gleichzeitig erhalten. Auch die Aufgabe der Flüssigkeit auf das Festbett ist hier unproblematisch gegenüber einem Rohrbündelreaktor. Der Katalysatorwechsel ist ebenfalls gegenüber einem Rohrbündelreaktor vereinfacht. Der vorgeschlagene modifizierte Schachttreaktor ist ferner ebenso wie der herkömmliche Schachttreaktor robuster im Betrieb und deutlich kostengünstiger in der Investition gegenüber einem Rohrbündelreaktor.

Da erfindungsgemäß die Kühlung innerhalb des Reaktors erfolgt, kann bei Hochdruckreaktoren die Wandstärke des Kühelementes geringer ausfallen als bei den Rohren eines Rohrbündelreaktors und damit ein besserer Wärmedurchgang und eine bessere Wärmeabfuhr als beim Rohrbündelreaktor erzielt werden. Ferner wird im Gegensatz zur bekannten Reaktorbetriebsweise mit einer Kühlung durch Kaltgaseinspeisung bei dem erfindungsgemäßen Reaktorkonzept die gleichmäßige Durchströmung des Festbettes mit den Fluiden nicht gestört. Die Wahl des Rohrdurchmessers der Kühelemente und die Wandstärke eines Kühlrohrs ergibt sich je nach Anwendungsfall aus dem kühlmittelseitigen Druckverlust und dem Betriebsdruck der Anlage.

Insbesondere hat sich in Versuchen herausgestellt, daß es besonders günstig ist, wenn das oben genannte Verhältnis der Abstände benachbarter Hohlkörper zwischen 1:10 und 1:5 liegt.

Zur Verbesserung der Wärmeübertragung wird ferner vorgeschlagen, daß die Hohlkörper Kühlrippen auf-

weisen. Diese Rippen können radial im Reaktor angeordnet werden, um einen schnellen und problemlosen Katalysatorwechsel nicht zu behindern.

Ein zusätzlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Reaktorkonzepts liegt darin, daß Schachtreaktoren herkömmlichen Typs auf eine einfache und kostengünstige Weise zum erfindungsgemäßen Schachtreaktor umgebaut werden können. Ein weiterer wichtiger Vorteil des erfindungsgemäßen Schachtreaktors ist darin zu sehen, daß eine sehr genaue Anfangsflüssigkeitsverteilung wie im Falle des Rohrbündelreaktors mit der Beschickung der Einzelrohre für den optimalen Betrieb des Reaktors zwar wünschenswert, aber nicht zwingend notwendig ist, da eine anfängliche Ungleichverteilung der Phasen durch die radiale Vermischung innerhalb der Katalysatorschüttung ausgeglichen wird.

Da in den meisten Fällen der größte Teil der Reaktionswärme im ersten Drittel der von den Reaktanden durchströmten Katalysatorschüttung freigesetzt wird, ist es bei längeren Reaktoren vorteilhaft, die Kühlleinbauten in mindestens zwei Abschnitte zu unterteilen, um eine gezielte Wärmeabfuhr durchführen zu können und so eine Vergleichsmäßigung der Temperaturverteilung im Reaktor zu erreichen.

Daher wird vorgeschlagen, daß mindestens zwei von einander unabhängige und entlang der Längsachse des Reaktors angeordnete Kühlelemente vorgesehen sind.

Das Kühlelement selber kann auf verschiedenste Weise ausgeführt sein. Als vorteilhaft hat sich erwiesen, wenn die Aufgabe- bzw. Sammelleitung ring-, sternförmig oder als verzweigtes Rohrsystem ausgebildet ist und einen Anteil zwischen 0,23 und 0,30 der freien Reaktorquerschnittsfläche einnimmt. Ferner ist es vorteilhaft, wenn die Hohlkörper selber einen Anteil zwischen 0,05 und 0,07 der freien Reaktorquerschnittsfläche einnehmen.

Die Erfindung betrifft auch die Verwendung des obengenannten Reaktors. Vorteilhaft ist dabei der Einsatz des Reaktors zum Herstellen von Fettalkoholen durch Hydrieren gesättigter und/oder ungesättigter Fettsäuren und/oder Fettsäureester, insbesondere Fett-säuremethylester, in Rieselfahrweise.

Sind mindestens zwei voneinander unabhängige und entlang der Längsachse des Reaktors angeordnete Kühlelemente vorgesehen, so ist die Verwendung eines solchen Reaktors insbesondere vorteilhaft zum Herstellen von Fettalkoholen durch Hydrieren ungesättigter Fettsäuren und/oder Fettsäureester, insbesondere Fett-säuremethylester, in Rieselfahrweise, wobei die Verfahrensparameter so gewählt werden, daß im Bereich des dem Einlaß der Fettverbindung nächsten Kühlelements eine Härtung erfolgt und im Bereich des/der übrigen Kühlelementes/Kühlelemente die Umsetzung in Fettalkohol stattfindet.

Ferner kann der obengenannte erfindungsgemäße Reaktor auch vorteilhaft zum Härteln von ungesättigten Fettsäuren und/oder ungesättigten Fettsäureverbindungen durch Hydrieren in Rieselfahrweise eingesetzt werden.

Beispiele

Im folgenden wird ein Ausführungsbeispiel des erfindungsgemäßen Schachtreaktors anhand von Zeichnungen näher beschrieben. Es zeigt

Fig. 1 eine erfindungsgemäße Ausführung eines Schachtreaktors im Längsschnitt,

Fig. 2 einen Schnitt A – B nach Fig. 1.

Fig. 3 eine alternative Anordnung der Aufgabe- bzw. Sammelleitung im Querschnitt,

Fig. 4 eine weitere alternative Anordnung einer Aufgabe- bzw. Sammelleitung, ebenfalls im Querschnitt und

Fig. 5 eine weitere erfindungsgemäße Ausführungsform des Schachtreaktors im Längsschnitt.

Innerhalb der Behälterwand 1 einer erfindungsgemäßen Ausführung des senkrecht angeordneten Schachtreaktors nach **Fig. 1** ist ein Kühlelement mit senkrechten Kühlrohren 3 angeordnet, die von einem ringförmigen Kühlflüssigkeitsverteiler 9 mit der Kühlflüssigkeit versorgt werden. Dieser Verteiler ruht auf einer Auflage 6. Nach Durchströmen der Kühlrohre 3 tritt die Kühlflüssigkeit in einen ebenfalls ringförmigen Kühlflüssigkeitssammler 4 ein und wird von dort aus dem Reaktor herausgeführt. Das Einsatzprodukt tritt durch den Zulauf 2 und ggf. durch einen Phasen-Verteiler am Kopf des Reaktors ein und durch den am Fuß des Reaktors angeordneten Ablauf 7 wieder aus.

20 Die Anordnung des Kühlelements innerhalb des Reaktors ist besonders deutlich in **Fig. 2** dargestellt. Hier wie auch in den übrigen Zeichnungen sind durch gleiche Bezugszeichen auch gleiche Teile bezeichnet. Erkennbar ist der aus mehreren Ringen bestehende Kühlflüssigkeitssammler 4, an den die senkrechten, im Querschnitt gezeigten Kühlrohre 3 mit zusätzlichen Kühlrippen 8 angeschlossen sind.

Anstelle der ringförmigen Anordnung der Kühlrohre 3 sind auch andere Anordnungen der Kühlrohre möglich und liegen im Rahmen der Erfindung. So zeigen

Fig. 3 und **4** Verteiler bzw. Sammler mit verzweigter bzw. sternförmiger Anordnung.

Eine weitere erfindungsgemäße Variante des Schachtreaktors ist in **Fig. 5** dargestellt. Anstelle eines einzigen Kühlelementes sind im Reaktor 2 senkrecht übereinander angeordnete ringförmige Kühlelemente angeordnet. Bei dieser Ausführungsform der Erfindung läßt sich der Reaktor derart einstellen, daß bei der Herstellung von Fettalkoholen durch Hydrieren von Fetten, Fettsäuren bzw. Fettsäureestern im Bereich des einen Kühlelementes eine Härtung und im Bereich des anderen Kühlelementes die Herstellung des Endproduktes, des gehärteten Fettalkoholes, stattfindet.

Nachfolgend wird ein Ausführungsbeispiel zum erfindungsgemäßen Hydrieren mit dem beschriebenen Reaktor vorgestellt. In einem Hydrierreaktor mit herkömmlicher Betriebsweise, also ohne Wärmeabfuhr, wird bei einem Durchsatz von 1000 l Methylester/h und 7000 Nm³ Wasserstoff/h eine Temperaturerhöhung zwischen Reaktoreintritt und -austritt von Delta T = 25 K erreicht. Zum Erreichen dieses Temperaturanstiegs ist ein Molverhältnis n_{H2}/n_{MЕ} = 80 nötig. Die durch die chemische Umsetzung bedingten Wärmeleistung des Reaktors beträgt 80 kW.

Bei der Verwendung der oben beschriebenen Küleinbauten, die aus 6 senkrechten Rohren zu $d_{R,a} = 0,04 \text{ m}$ und $LR = 5 \text{ m}$ und jeweils oben und unten aus einer Ringleitung bestehen, können 45 kW über das Kühlmittel abgeführt werden. Dieser Rechnung liegt ein mittleres Temperaturgefälle von Delta T = 20 K und ein Wandwärmemedurchgangskoeffizient $k_w = 60 \text{ D} \text{W/m}^2\text{K}$ zugrunde.

Der bei dieser Wärmeabfuhr von 45 kW über das Kühlmittel für eine Begrenzung des Temperaturanstiegs von 25 K zwischen Reaktoreintritt und -austritt benötigte Wasserstoffstrom beträgt nur noch 2100 Nm³/h. Dies entspricht einem Molverhältnis n_{H2}/n_{MЕ} = 24.

Bezugszeichenliste

- | | |
|--|----|
| 1 Behälterwand | |
| 2 Zulauf (Gas, Flüssigkeit) und Phasen-Verteiler | |
| 3 Kühlrohr | 5 |
| 4 ringförmiger Kühlflüssigkeitssammler | |
| 6 Auflage | |
| 7 Ablauf der Reaktionsprodukte | |
| 8 Kühlrippen | |
| 9 ringförmiger Kühlflüssigkeitsverteiler | 10 |

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

Patentansprüche

1. Lotrecht angeordneter rohrförmiger Schachtreaktor für feststoffkatalysierte Gas-Flüssigkeitsreaktionen, insbesondere Hydrierreaktor für die Rieselfahrweise ("trickle bed"), mit einem Mantel (1), mindestens einem Einlaß (2) und mindestens einem Auslaß (7) und einem Katalysatorfestbett, gekennzeichnet durch mindestens ein zummindest teilweise innerhalb des Katalysatorfestbetts angeordnetes Kühlelement (3, 4, 9), das mehrere Hohlkörper, insbesondere Rohre (3), mit lotrechten Längsachsen aufweist, die oben und unten in eine Aufgabe (9) — bzw. Sammelleitung (4) münden, wobei die Hohlkörper (3) in konzentrischen Ringen um die Längsachse des Reaktors angeordnet sind, wobei der Abstand benachbarter Hohlkörper innerhalb eines Rings dabei vorzugsweise geringer als der Abstand benachbarter Ringe ist. 15
2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das genannte Verhältnis der Abstände zwischen 1:10 und 1:55 liegt. 20
3. Reaktor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Hohlkörper (3) Kühlrippen (8) aufweisen. 35
4. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens zwei von einander unabhängige und entlang der Längsachse des Reaktors angeordnete Kühlelemente vorgesehen sind. 40
5. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Aufgabe (9)- bzw. Sammelleitung (4) ring-, sternförmig oder als verzweigtes Rohrsystem ausgebildet ist und einen Anteil zwischen 0,23 und 0,30 der freien Reaktorquerschnittsfläche einnimmt. 45
6. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Hohlkörper (3) einen Anteil zwischen 0,05 und 0,07 der freien Reaktorquerschnittsfläche einnehmen. 50
7. Verwendung des Reaktors nach einem der Ansprüche 1 bis 6 zum Herstellen von Fettalkoholen durch Hydrieren gesättiger und/oder ungesättigter Fettsäuren und/oder Fettsäureester, insbesondere Fettsäuremethylester, in Rieselfahrweise. 55
8. Verwendung des Reaktors nach Anspruch 4 zum Herstellen von Fettalkoholen durch Hydrieren ungesättigter Fettsäuren und/oder Fettsäureester, insbesondere Fettsäuremethylester, in Rieselfahrweise, wobei die Verfahrensparameter so gewählt werden, daß im Bereich des dem Einlaß (2) der Fettverbindung nächsten Kühlelements (3, 4, 9) eine Härtung erfolgt und im Bereich des/der übrigen Kühlelements/Kühlelemente (3, 4, 9) die Umsetzung zu Fettalkohol stattfindet. 60
- 65

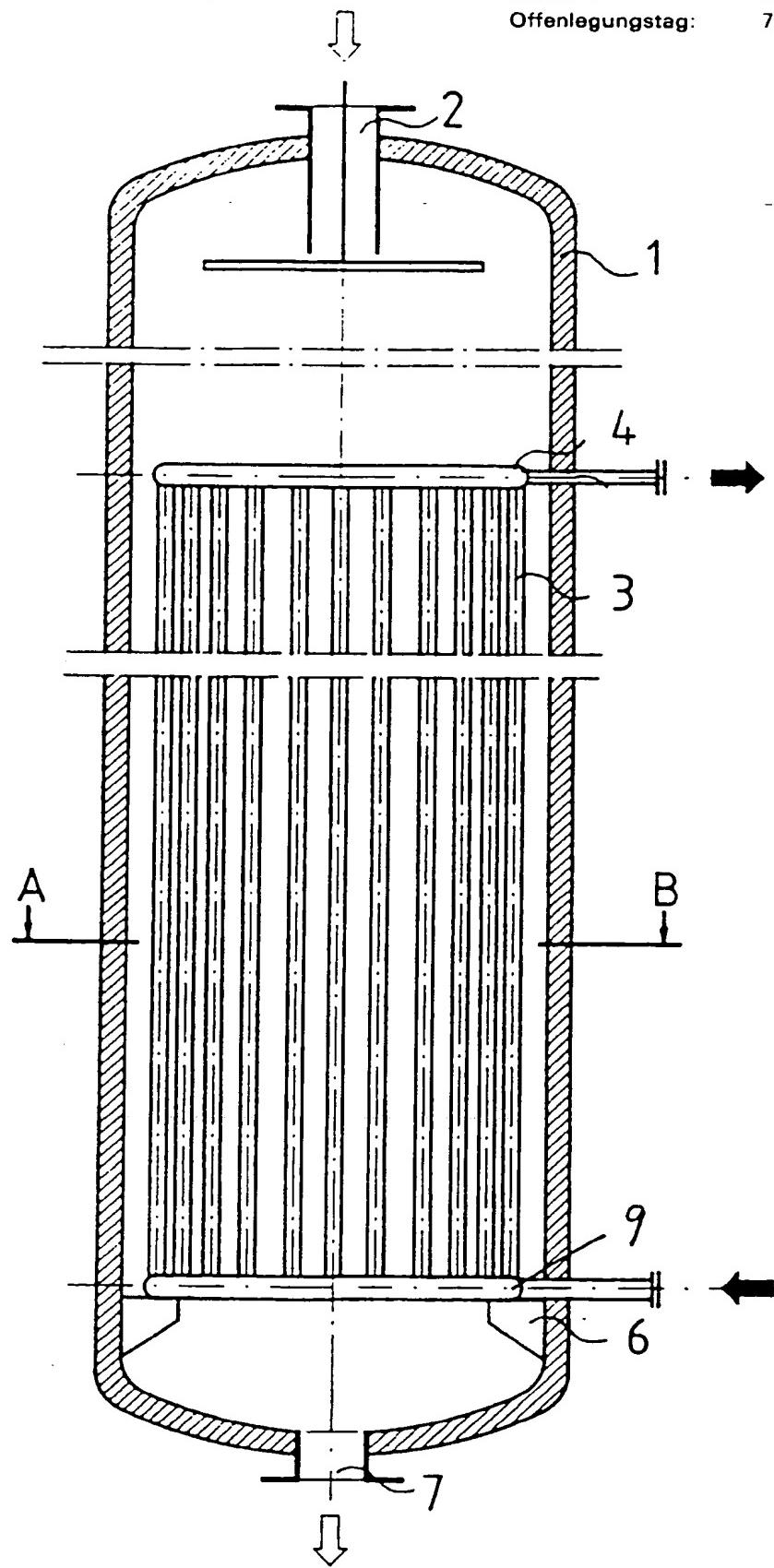


Fig. 1

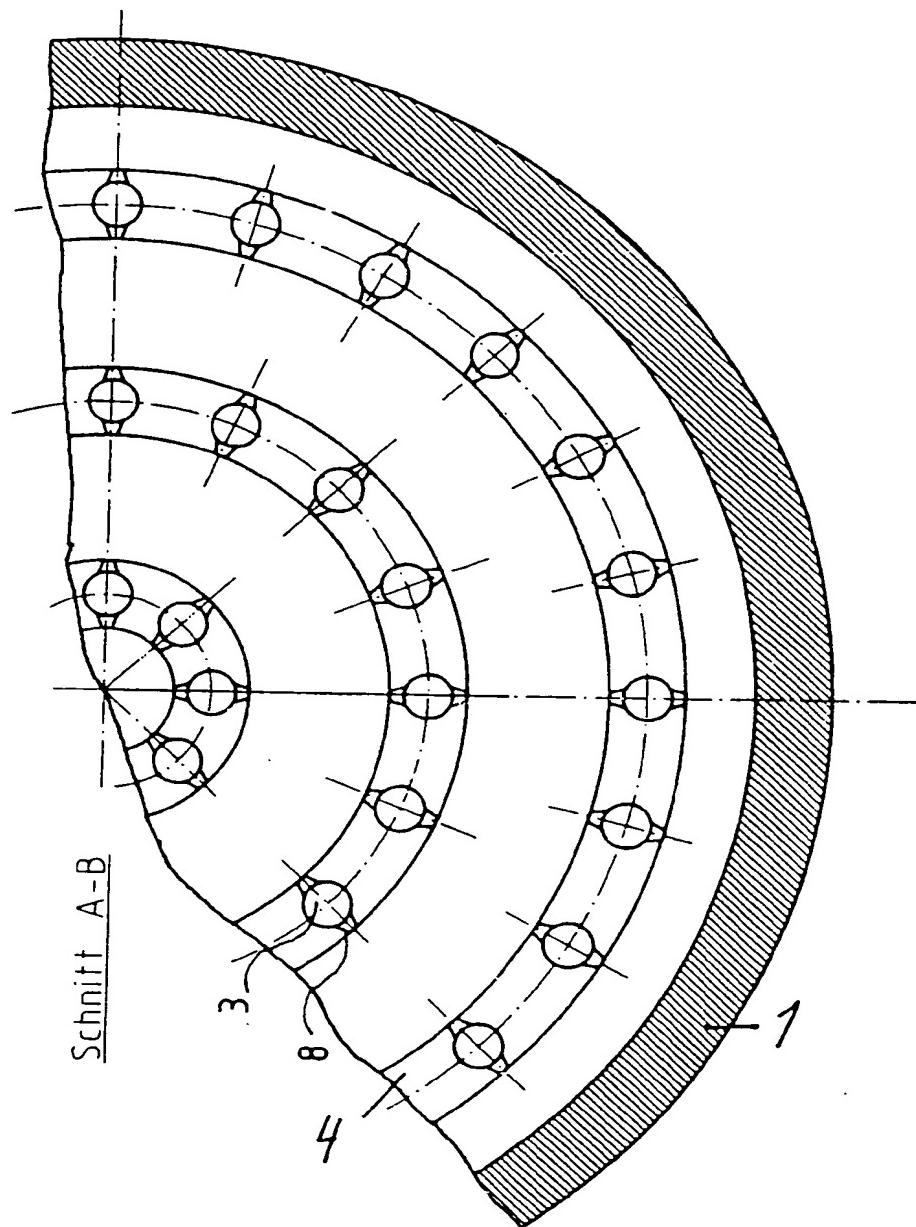


Fig. 2

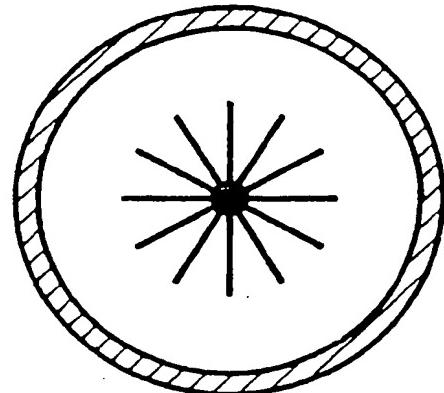


Fig. 4

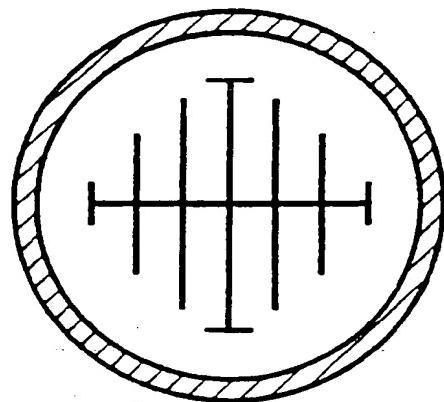


Fig. 3

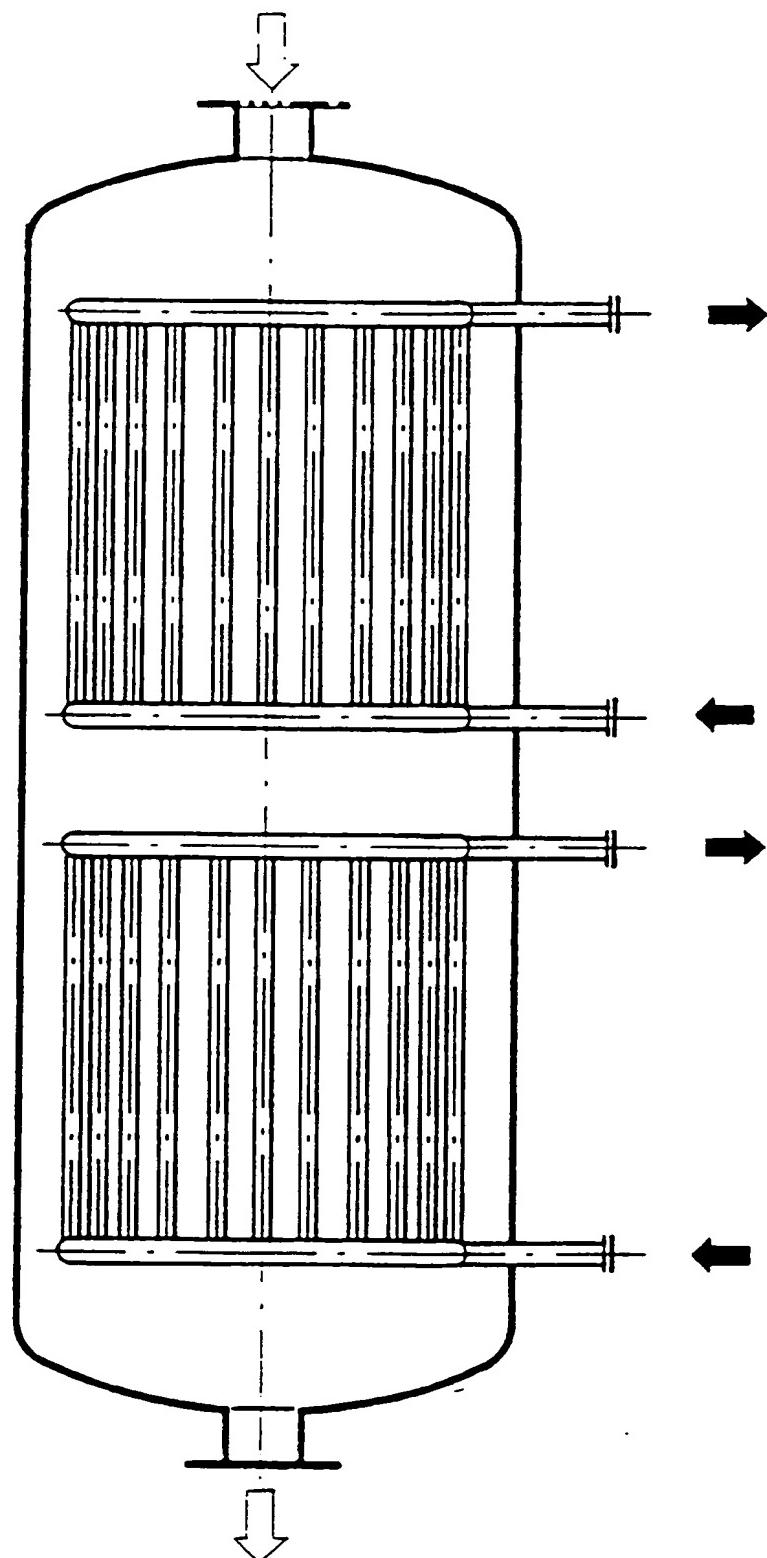


Fig. 5